

PCT/JP01/06964

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

13.08.01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 8月11日

REC'D 28 SEP 2001

WIPO

PCT

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-244960

出 願 人

Applicant(s):

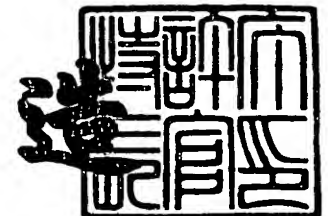
三洋電機株式会社

PRIORITY  
DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 8月31日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3080577

【書類名】 特許願

【整理番号】 NAB1003089

【提出日】 平成12年 8月11日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号 三洋電機株式会  
社内

【氏名】 磯野 隆博

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号 三洋電機株式会  
社内

【氏名】 株本 浩揮

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号 三洋電機株式会  
社内

【氏名】 近野 義人

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号 三洋電機株式会  
社内

【氏名】 米津 育郎

【特許出願人】

【識別番号】 000001889

【氏名又は名称】 三洋電機株式会社

【代理人】

【識別番号】 100090446

【弁理士】

【氏名又は名称】 中島 司朗

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014823

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9004596

【プールの要否】 要

【書類名】 明細書  
【発明の名称】 燃料電池  
【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体高分子膜の一方側にカソード触媒層、他方側にアノード触媒層が配されているセルを、前記アノード触媒層に対向して燃料が流通する燃料流路が形成された第 1 プレートと、前記カソード触媒層に対向して酸化剤が流通する酸化剤流路及びリブが形成された第 2 プレートとで挟持して構成された燃料電池であって、

前記カソード触媒層と第 2 プレートとの間にガス拡散層が介挿され、

当該ガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方は、

前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう構成されていることを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】 前記ガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方は、酸化剤入口付近の領域において、

前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう構成されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 3】 前記ガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方は、酸化剤の入口側端部から出口側に向かう一定の領域において、

前記リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう構成されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 4】 前記一定の領域の面積は、

前記ガス拡散層における酸化剤の入口側端部から出口側端部までの全領域の面積に対して 1 0 % 以上 9 0 % 以下であることを特徴とする請求項 3 記載の燃料電池。

【請求項 5】 前記ガス拡散層は、

導電性基材に撥水性材料が含まれたもので形成され、

前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リブと対向する領域と比べて、撥水性材料含有量を小さく設定されていることを特徴とする請求項 1 ～ 4 のいずれか記載の燃料電池。

【請求項 6】 前記ガス拡散層は、

前記酸化剤流路と対向する領域における撥水性材料含有量が、前記リブと対向する領域の撥水性材料含有量に対して 0.2～0.8 倍の範囲内に設定されていることを特徴とする請求項 5 記載の燃料電池。

【請求項 7】 前記ガス拡散層には、

カーボン粉末を含有する混合物が充填されることによって保水性調整層が形成され、

当該保水性調整層は、前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう調整されていることを特徴とする請求項 1～4 のいずれか記載の燃料電池。

【請求項 8】 前記ガス拡散層において、

前記酸化剤流路と対向する領域に用いられるカーボン粉末の保水性は、前記リブと対向する領域に用いられるカーボン粉末の保水性より大きいことを特徴とする請求項 7 記載の燃料電池。

【請求項 9】 前記ガス拡散層において、

前記酸化剤流路と対向する領域に用いられるカーボン粉末の比表面積は、前記リブと対向する領域に用いられるカーボン粉末の比表面積より大きいことを特徴とする請求項 7 記載の燃料電池。

【請求項 10】 前記保水性調整層は、カーボン粉末と撥水性材料との混合物が充填されることによって形成され、

前記酸化剤流路と対向する領域に充填される混合物中の撥水性材料含有量が、前記リブと対向する領域に充填される混合物中の撥水性材料含有量に対して 0.2～0.8 倍の範囲内に設定されていることを特徴とする請求項 7 記載の燃料電池。

【請求項 11】 前記カソード触媒層は、

触媒が担持されたカーボン粉末にイオン交換体が添加された混合物からなり、  
前記リブと対向する領域に用いられるカーボン粉末の比表面積は、酸化剤出口側に用いられるカーボン粉末の比表面積より大きいことを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 1 2】 前記カソード触媒層は、  
触媒が担持されたカーボン粉末にイオン交換体が添加された混合物からなり、  
前記酸化剤流路と対向する領域では、前記リブと対向する領域と比べてイオン  
交換体の添加量が多いことを特徴とする請求項 1 の記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電解質膜に固体高分子膜を用いた燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池は、アノード側に水素リッチな燃料ガス、カソード側に酸化剤ガスを  
それぞれ供給し、水素と酸素を電気化学的に反応させて発電を行う電池であって  
、一般的に酸化剤ガスとしては空気が用いられ、燃料ガスには、天然ガス、ナフ  
サなどの軽質炭化水素や、低級アルコールなどの燃料を改質処理したもの、ある  
いは純水素ガスが用いられる。

【0003】

この燃料電池としてはリン酸型、炭酸溶融塩型など電解質の種類によって様々  
なものがあるが、近年では、陽イオン交換型の固体高分子膜 (proton exchange  
membrane) を電解質膜とし、比較的運転温度が低温で且つ高性能で発電するこ  
とができる燃料電池が積極的に開発されている。

このタイプの燃料電池は、固体高分子膜の一方の面にカソード、他方の面にア  
ノードを配してなるセルを、ガス流路及び当該流路間にリブが形成された一対の  
プレートで挟持した基本構造を持ち、実用的な燃料電池においては、このような  
セルユニットが多数積層されて高出力が得られるようになっている。

【0004】

そして、カソード及びアノードの各々は一般的に、固体高分子膜上に形成され  
た電極触媒層とその上を覆って設けられたガス拡散層とから構成されており、こ  
のガス拡散層は、電極触媒層とガス流路との間に介在することによって、流路を  
流通するガスを電極触媒層に行き渡らせると共に、電極触媒層とプレートのリブ

との間で導電性を確保する働きをなす。

【 0 0 0 5 】

また、固体高分子膜や電極触媒層は、乾燥状態ではイオン伝導性が低いので、一般的には燃料ガスや酸化剤ガスを加湿してから燃料電池に供給することによって、固体高分子膜を湿潤させながら運転する方法がとられているが、近年、燃料電池システムのコンパクト化が要求されるのに伴って、酸化剤ガスとして空気を無加湿で供給するタイプも出てきている。

【 0 0 0 6 】

ところで、このタイプの燃料電池を高性能で発電するためには、固体高分子膜や電極触媒層を全体的に均一に湿潤させることが望ましい。それは、固体高分子膜や電極触媒層の湿潤度が領域毎にばらついて湿潤不足もしくは湿潤過剰となる領域が生じると、湿潤不足の領域ではイオン導電性が悪くなり、湿潤過剰の領域では電極触媒層におけるガス拡散性が悪くなるため、優れた発電性能が得られないからである。

【 0 0 0 7 】

【発明が解決しようとする課題】

しかし、実際には、酸化剤ガスの導入口付近（空気入口側）の領域においては、出口側領域と比べて酸化剤ガス中に水分が蒸発しやすいので、固体高分子膜や電極触媒層が湿潤不足となりやすい傾向がある。

また、酸化剤ガス流路に対向する領域では、リブに対向する領域と比べて酸化剤ガス中に水分が蒸発しやすいため、固体高分子膜や電極触媒層が湿潤不足となりやすい傾向もある。

【 0 0 0 8 】

このため、無加湿の酸化剤ガス（空気）を供給して発電する燃料電池の場合には、固体高分子膜及び電極触媒層の湿潤性は不均一となりやすい。

このような問題に対して、例えば、特開平 1 1 - 1 5 4 5 2 3 号公報には、カソードのガス拡散層および／またはアノードのガス拡散層のガス供給口側に近い部分が、ガス排出口側に近い部分よりも、ガス透過度が小さくなるように構成した固体高分子電解質型燃料電池の単セルが提案されている。

## 【0009】

この技術によれば、例えば図9に示すように、固体高分子膜301にカソード310及びアノード320が配されたセル300において、カソード310に沿って酸化剤ガス（白矢印331）が流れ、アノード320に沿って燃料ガス（白矢印332）が流れることによって発電するようになっているが、上記カソード310において、ガス供給口側に近い領域311のガス拡散層が、ガス排出口側に近い領域312のガス拡散層よりも、ガス拡散性が小さく調整されている。

## 【0010】

ガス拡散性の調整は、具体的には、ガス拡散層の厚さや気孔率を変えることによってなされている。即ち、入口部311では、ガス拡散層の気孔率を小さくしたり、厚さを大きくしてガス拡散性を小さくし、出口部312では、気孔率を大きくしたり、厚さを小さくすることによって、ガス拡散性を大きくしている。

この技術によれば、酸化剤ガス入口側における固体高分子膜301の乾燥を抑えて、酸化剤ガス入口側と出口側とで湿潤性を均一化することが可能と考えられるが、酸化剤ガス流路に対向する領域とリブに対向する領域とで湿潤性が不均一となる問題は残るので、燃料電池の性能を向上させるためには、この点を改良することが望まれる。

## 【0011】

また、上記のようにガス拡散性を領域毎に調整する手法を用いた場合、酸化剤がカソード全体に均一的に行き渡りにくくなるので、電極反応における濃度分極が大きくなることによって出力低下する可能性もある。

本発明は、このような課題に鑑み、固体高分子膜にアノード及びカソードを配してなるセルを備えた燃料電池において、固体高分子膜及び電極触媒層の湿潤性を均一化することによって、安定して優れた特性で発電できるものを提供することを目的とする。

## 【0012】

## 【課題を解決するための手段】

本発明では、上記目的を達成するために、固体高分子膜にアノード及びカソードを配してなるセルを備えた燃料電池において、カソード触媒層とカソード側ブ



レートとの間に介挿されるガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方を、酸化剤流路と対向する領域で、リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるように構成した。

## 【 0 0 1 3 】

ここで、「層の保水性」というのは、層の単位体積あたりに保持することのできる水分量を指すものであって、この水分量が多いほど層の保水性が高いことになる。

このようにして、カソード側ガス拡散層やカソード触媒層の保水性を調整すれば、固体高分子膜及び電極触媒層が、酸化剤ガス流路に対向する領域においてリブに対向する領域よりも乾燥しやすいという傾向を抑え、これらをより均一的に保湿することができる。

## 【 0 0 1 4 】

ここで、少なくとも酸化剤入口側の領域においては、ガス拡散層の保水性を調整することが効果的である。これは、酸化剤入口側の領域においては、酸化剤ガス中の水分量が少なく、酸化剤ガス中に水分が放散しやすいため、酸化剤流路と対向する領域とリブと対向する領域とで固体高分子膜及び電極層の湿潤が不均一になりやすいからである。

## 【 0 0 1 5 】

また、湿潤性を均一化する効果を得るためには、ガス拡散層において、酸化剤の入口側端部から出口側に向かう一定割合（好ましくはガス拡散層における酸化剤の入口側端部から出口側端部までの全領域の面積に対して10%～90%の範囲の領域に上記のような保水性調整を行うことが好ましい。

このようなガス拡散層における保水性の調整は、ガス拡散層を撥水性材料が含有された導電性基材で形成し、酸化剤流路と対向する領域では、リブと対向する領域と比べて撥水性材料の含有量を小さく設定することによって行うことができる。

## 【 0 0 1 6 】

或は、ガス拡散層に、カーボン粉末と撥水性材料とを含む混合物を充填して保水性調整層を形成し、この保水性調整層の保水性を調整することによって行うこ

ともできる。

例えば、酸化剤流路と対向する領域では、リブと対向する領域と比べて、保水性調整材中のカーボン粉末の保水性が高いもの（比表面積の大きいもの）を用いることによって行うこともできる。

【0017】

なお、上記のようにガス拡散層やカソード触媒層に保水性調整を施しても、当該層の全体領域でガス拡散性を確保し、電極全体に均一的に酸化剤を行き渡らせることは可能である。

よって、本発明によれば、固体高分子膜及び電極触媒層の全体領域にわたって湿潤性とガス拡散性を確保することができるので、高性能で燃料電池を発電することができる。

【0018】

特に無加湿の酸化剤ガス（空気）をカソードに供給して発電する燃料電池の場合には、本発明を適用することによって得られる効果も大きい。

【0019】

【発明の実施の形態】

〔実施の形態1〕

まず、固体高分子型燃料電池の基本構成を説明し、次にセル構成について詳細に説明する。

＜燃料電池システム全体の構成と動作＞

図1は、本実施の形態1の固体高分子型燃料電池を構成するセルユニット10の組立図である。

【0020】

本図に示すように、セルユニット10は全体として、セル（電極／高分子膜接合体：membrane/electrode assembly）20をカソード側セパレータ板60と、アノード側セパレータ板50とで挟持して構成されている。

セル20は、固体高分子膜21の片面にカソード、他面にアノードが配されて構成されている。

【0021】

カソードは、固体高分子膜21上に形成されたカソード触媒層22とその上に配されたガス拡散層24からなり、アノードは、固体高分子膜21上に形成されたアノード触媒層23とその上に配されたガス拡散層25とからなる。

従って、カソード触媒層22とカソード側セパレータ板60の間にガス拡散層24が、アノード触媒層23とアノード側セパレータ板50との間に、ガス拡散層25が、それぞれ介挿されていることになる。

#### 【0022】

固体高分子膜21は、パーフルオロカーボンスルホン酸からなる薄膜状の電解質である。

カソード触媒層22及びアノード触媒層23は、白金系触媒を担持したカーボン粉末にイオン交換体(Nafion: Du Pont社製、以下同様)及び撥水性樹脂が添加されたものからなる膜であり、固体高分子膜21の主面中央部にそれぞれホットプレスにより密着加工されている。白金系触媒としては、Pt触媒やPt-Ru触媒が用いられる。Pt触媒は燃料ガスに純水素を用いる場合に良好な触媒作用を呈するが、燃料ガス中に一酸化炭素COが含まれると被毒し、触媒作用が低下することもあるが、Pt-Ruは比較的COに被毒されにくい。

#### 【0023】

なお図1において、アノード触媒層23は固体高分子膜21の下面側にあるので破線で表示している。

ガス拡散層24、25は、集電体とも称され、導電性を有するガス透過性の材料から成る層であって、カーボンペーパーをはじめとする導電性多孔質材料に、ガスの拡散性を確保するため撥水性材料が添加されて形成されている。ここでは、カーボンペーパーに、撥水性材料としてフッ素樹脂を含浸したものを用いることとするが、撥水处理を施したカーボンペーパーにカーボン粒子を充填したものを用いることもできる。

#### 【0024】

アノード側セパレータ板50はフェノール樹脂にカーボン粉末を混合したものを射出成形してなる部材であって、ガス拡散層25と対向する面(図1で下面)において、図面y方向に沿って燃料ガス(水素リッチな改質ガス)を流通させる

チャンネル 5 5 が形成されると共に、チャンネル 5 5 どうしの間にリブ 5 6 が形成されている。

## 【 0 0 2 5 】

カソード側セパレータ板 6 0 はアノード側セパレータ板 5 0 とほぼ同様の部材であり、当図からは見えないが、図面 y 方向に沿って酸化剤ガス（空気、図中白抜き矢印 A）を流通させる酸化剤チャンネル 6 5 及びリブ 6 6（図 3 参照）が形成されている。

更に、固体高分子膜 2 1、ガスケット 3 0、4 0、アノード側セパレータ板 5 0、カソード側セパレータ板 6 0 にはその四隅に開孔部 6 1～6 4、4 1～4 4、2 1 1～2 1 4、3 1～3 4、5 1～5 4（4 4、2 1 4、3 4、5 4 は不図示）が設けてある。

## 【 0 0 2 6 】

このうち開孔部 5 3、3 3、2 1 3、4 3、6 3 は、アノード側セパレータ板 5 0 のチャンネル 5 5 に燃料ガスを供給するマニホールド、開孔部 5 1、3 1、2 1 1、4 1、6 1 は、燃料ガスを排出するマニホールドを形成するものである。一方、開孔部 5 4、3 4、2 1 4、4 4、6 4 は、カソード側セパレータ板 6 0 のチャンネルに酸化剤ガスを供給するマニホールド、開孔部 5 2、3 2、2 1 2、4 2、6 2 は、酸化剤ガスを排出するマニホールドを形成するものである。

## 【 0 0 2 7 】

なお、このような構成を有するセルユニット 1 0 は、図 2 に示すように、実際には高電圧・高電力が取り出せるように、多数積層され、集電板 7 0、電気絶縁と熱絶縁を目的とする絶縁板 7 1 ならびに荷重を加えて積層状態を保持するための締付板 7 2 によって挟持し、ボルト 7 3 とナット 7 4 により締め付けられて燃料電池スタックが形成されている。なお、締め付け荷重は、皿バネ 7 5 により加えられている。

## 【 0 0 2 8 】

このような燃料電池において、その運転時には、燃料ガス及び空気的一方または両方が、加湿されてから各チャンネルに供給され、以下のように発電に用いられる。

チャンネル55に供給される燃料ガスは、ガス拡散層25を介して、アノード触媒層23に供給される。そして、アノード触媒層23において燃料ガス中の水素はイオン化して電子を放出する ( $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$ )。このとき生成されるプロトンは、固体高分子膜21中をカソード触媒層22側へ移動する。なお、このプロトンの移動に伴って、アノード触媒層23の水分もカソード側に移動する。

## 【0029】

一方、空気は、ガス拡散層24を介してカソード触媒層22側に供給される。ガス拡散層24において、空気中の酸素は、固体高分子膜21中を移動して来るプロトンと結合して水を生成する ( $1/2\text{O}_2 + 2\text{e}^- + 2\text{H}^+ \rightarrow \text{H}_2\text{O}$ )。そして、セル20（特に固体高分子膜21やカソード触媒層22）は、上記の加湿水及び生成水によって湿潤されるが、セル20（特に固体高分子膜21やカソード触媒層22）からは酸化剤チャンネル65を流れる空気中に水分が放散される。

## 【0030】

## ＜セル構成についての詳細説明＞

次に、セル20の詳細な構成並びに作用について説明する。

カソード触媒層22とカソード側セパレータ板60とに挟まれたガス拡散層24において、酸化剤ガス（空気）の入口側（開孔部64側）から一定の範囲（図中20A）では、酸化剤チャンネル65と対向する領域（チャンネル対向部24A）では、リブ66と対向する領域（リブ対向部24B）と比べて保水性が高くなるように調整されている。

## 【0031】

このガス拡散層24における保水性の調整は、具体的には、チャンネル対向部24Aにおける単位面積当たりの撥水性材料の含有量を、リブ対向部24Bにおける単位面積当たりの撥水性材料の含有量より小さく設定することによって行う。

ここで、チャンネル対向部24Aにおける単位面積当たりの撥水性材料の含有量Xaと、リブ対向部24Bにおける単位面積当たりの撥水性材料の含有量Xbとの比率については、Xa/Xbが0.2以上0.9以下となるように設定するこ

とが好ましい。その根拠については実施例 1 で後述する。

### 【 0 0 3 2 】

図 3 は、上記空気入口側の範囲 2 0 A において、セルユニット 1 0 を厚み方向（図 1 における x z 平面）で切断した断面を模式的に示す図である。

このようにガス拡散層 2 4 における保水性を調整することによって、以下のような効果を奏する。

チャンネル対向部 2 4 A では、空気がその表面に沿って流通するため、図 3 中に水分蒸発力をグラフで示しているように、リブ対向部 2 4 B と比べて水分が空気中に蒸発しやすい状態にある。特に、空気入口側の範囲 2 0 A においては、出口側の範囲 2 0 B と比べて、酸化剤チャンネル 6 5 を流通する空気が乾燥しているので、チャンネル対向部 2 4 A における水分が蒸発しやすい傾向が大きい。なお、酸化剤チャンネル 6 5 に無加湿の空気が供給される場合にはこの傾向は特に顕著なものとなる。

### 【 0 0 3 3 】

これに対して、本セルユニット 1 0 では、空気入口側の領域 2 0 A において、ガス拡散層 2 4 は、チャンネル対向部 2 4 A でリブ対向部 2 4 B よりも保水性が高くなるように設定されているので、図 3 中に白抜き矢印に示すように、ガス拡散層 2 4 において、リブ対向部 2 4 B からチャンネル対向部 2 4 A の方へ水分が移動する力が働く。これによって、リブ対向部 2 4 B からチャンネル対向部 2 4 A に水分が補給されることになる。

### 【 0 0 3 4 】

従って、酸化剤チャンネル 6 5 に対向する部分で固体高分子膜やカソード触媒層が乾燥しやすいという傾向は抑えられ、セル 2 0 における酸化剤チャンネル 6 5 に対向する部分とリブ 6 6 と対向する部分との間で湿潤性が均一化されることになる。

ところで、一般的に酸化剤チャンネル 6 5 を流通する空気は、空気入口側の領域 2 0 A を通過して出口側の範囲 2 0 B に到るときには水分含有量がかなり大きくなっているので、出口側の範囲 2 0 B では、チャンネル対向部 2 4 A とリブ対向部 2 4 B との水分蒸発力の差は小さい。従って、空気出口側の領域 2 0 B でも、空

気入口側の領域 A と同様に保水性の調整を施すと、逆に、チャネル対向部 2 4 A の方がリブ対向部 2 4 B よりも湿潤となる可能性もある。

【 0 0 3 5 】

この点を考慮すると、湿潤性の均一化を図るために、上述のように空気入口側の領域 2 0 A だけにガス拡散層 2 4 に保水性調整を施すのが好ましいと考えられる。そして、保水性の調整を施す空気入口側の領域 2 0 A の面積は、ガス拡散層 2 4 の全体面積に対して 1 0 % 以上 9 0 % 以下の範囲内に設定することが好ましい。

【 0 0 3 6 】

但し、無加湿の空気を供給する場合など、酸化剤チャネル 6 5 を流通する空気が出口付近でもかなり乾燥している場合もある。そのような場合は、ガス拡散層 2 4 の全体面積に対して保水性の調整することが好ましいと考えられる。

なお、ガス拡散層 2 4 において、上記のように保水性を領域ごとに調整しても、ガス拡散性はあまり影響を受けないので、ガス拡散層 2 4 の反応領域全体においてガス拡散性の均一性を保つことが可能である。従って、安定性よく優れたセル電圧で発電することが可能となる。

【 0 0 3 7 】

〔実施例 1〕

上記実施の形態 1 に基づき、以下の仕様で実施例のセル 1 ～ 5 （単セル）を作製すると共に、比較例としてセル 6 ， 7 を作製し、セル電圧測定試験を行った。

【 0 0 3 8 】

【表 1】

	ガス拡散層中 PTFE 含有量		PTFE 含有量の 比率 $X_a/X_b$
	チャネル 対向部 $X_a$	リブ対向部 $X_b$	
セル 1	4	30	0.13
セル 2	6	30	0.20
セル 3	10	30	0.33
セル 4	17	30	0.57
セル 5	25	30	0.83
セル 6	30	30	1.00
セル 7	40	30	1.33

固体高分子膜：パーフルオロカーボンスルホン酸膜（Nafion 112 膜、12 cm × 12 cm、厚さ 50  $\mu$ m）

カソード触媒層 22 及びアノード触媒層 23：10 cm × 10 cm、厚さ 20  $\mu$ m

ガス拡散層は、カソード側、アノード側とも、カーボンペーパーに、撥水性材料としてのポリテトラフルオロエチレン（PTFE）を含浸させて形成し、10 cm × 10 cm、厚さ 200  $\mu$ m とした。

#### 【0039】

但し、セル 1～5 において、カソード側ガス拡散層の空気入口側領域（全体面積に対して 50%）において、表 1 に示すように、チャネル対向部 24A では PTFE 含有量  $X_a$  を（4、6、10、17、25 wt% とし、リブ対向部 24B における PTFE 含有量  $X_b$ （30 wt%）と比べて小さく設定した。

カソード側ガス拡散層の空気出口側領域では、PTFE 含有量は一律に 30 wt% に設定した。

#### 【0040】



アノード側ガス拡散層の P T F E 含有量は、いずれも全体領域で一律に 3 0 w t % に設定した。

比較例のセル 6, 7 では、カソード側ガス拡散層のチャンネル対向部 2 4 A におけるフッ素樹脂含有量を 3 0、4 0 w t % の各値に設定した以外は、上記セル 1 ~ 5 と同様に作製した。

#### 【 0 0 4 1 】

以下に各セルの具体的な作製方法を示す。

カソード側ガス拡散層：カーボンペーパー（厚み 2 0 0  $\mu$  m）を用意し、このカーボンペーパーを P T F E 分散溶液に浸漬して、3 8 0  $^{\circ}$  C で 1 時間焼成した。この時点での P T F E 含有量は全体領域で一律的に所定の値（セル 1 では 4 w t %、セル 2 では 6 w t %、セル 3 では 1 0 w t %、セル 4 では 1 7 w t %、セル 5 では 2 5 w t %）となるように調整した。

#### 【 0 0 4 2 】

そして、空気入口側領域のチャンネル対向部 2 4 A に相当する領域にだけマスキングシートを置いて、その上から P T F E 分散溶液をスプレー塗布した後、再度 3 8 0  $^{\circ}$  C で 1 時間焼成した。

このとき、空気入口側領域のチャンネル対向部 2 4 A 以外の領域で P T F E 含有量が 3 0 w t % となるように、P T F E 分散溶液塗布量を調整した。

#### 【 0 0 4 3 】

このようにして、セル 1 ~ 5 用のカソード側ガス拡散層を作製した。

セル 6 用のカソード側ガス拡散層は、カーボンペーパーを P T F E 分散溶液に浸漬した後に 3 8 0  $^{\circ}$  C で 1 時間焼成することによって作製した。

セル 7 用のカソード側ガス拡散層は、セル 6 用のカソード側ガス拡散層と同じものに、更に、空気入口側領域のチャンネル対向部 2 4 A に相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から P T F E 分散溶液をスプレー塗布した後、再度 3 8 0  $^{\circ}$  C で 1 時間焼成した。

#### 【 0 0 4 4 】

このとき、P T F E 分散溶液塗布量は、空気入口側領域のチャンネル対向部における P T F E 含有量が 4 0 w t % となるように調整した。

以下の工程は、セル 1 ～ 7 において共通である。

アノード側のガス拡散層：カーボンペーパー（厚み  $200\mu\text{m}$ ）を用意し、PTFE 分散溶液に浸漬した後、 $380^{\circ}\text{C}$  で 1 時間焼成した。これにより、PTFE 含有量が 30wt% のアノード側のガス拡散層を作製した。

#### 【0045】

カソード触媒層およびアノード触媒層の形成：Pt 担持カーボン粉末、Nafion 溶液、PTFE 分散溶液を、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 20 : 10 となる割合で混合してスラリーを作製した。このスラリーを、前記各ガス拡散層に厚さ  $20\mu\text{m}$  で塗布することによって、カソード触媒層およびアノード触媒層を形成した。

#### 【0046】

上記のように触媒層を形成したガス拡散層（アノード及びカソード）を、固体高分子膜を介挿して重ね、 $150^{\circ}\text{C}$  - 60 sec の条件でホットプレスすることによってセル 1 ～ 7 を作製した。

#### （セル電圧測定試験）

このように作製した実施例及び比較例の各セル 1 ～ 7 を、以下の条件で運転し、セル電圧（電圧が安定したときの値）を測定した。

#### 【0047】

電流密度： $0.5\text{ A/cm}^2$

セル内運転温度： $80^{\circ}\text{C}$

燃料ガス：純水素

酸化剤ガス：空気

燃料ガス利用率：70%

酸化剤ガス利用率：40%

図 4 は、各セルのセル電圧測定値を示すものであって、空気入口側領域におけるリブ対向部 24B の PTFE 含有量  $X_b$  に対するチャネル対向部 24A における PTFE 含有量  $X_a$  の比率（ $X_a/X_b$ ）と、セル電圧（mV）との関係を示す特性図である。

#### 【0048】

考察：

図4では、セル2～5は、セル6、7と比べて、高いセル電圧が得られており、比率( $X_a/X_b$ )を0.2～0.8の範囲に設定するのが好ましいことがわかる。

これは、セル2～5では、カソード側ガス拡散層において、比率( $X_a/X_b$ )を0.2～0.8の範囲に設定しているので、チャンネル対向部24Aの保水性がリブ対向部24Bの保水性と比べて適度に大きくなっており、それによって、チャンネル対向部24Aとリブ対向部24Bとで固体高分子膜及び電極層の湿潤が均一化されているのに対して、セル6、7においては、このような湿潤性均一化の作用がないためと考えられる。

【0049】

なお、セル2～5と比べてセル1では、セル電圧がかなり低い。これは、セル1では、空気入口側領域におけるチャンネル対向部24Aのフッ素樹脂含有量がかなり少ないので、この部分に水が滞留してガス拡散性が極端に損なわれたためと考えられる。

また、別の実験によって、保水性を調整する範囲について調べたところ、カソード側のガス拡散層の空気入口側端部から出口側にかけて10wt%未満であると十分な撥水性が得られず、逆に90wt%を超えるとガス拡散性が極端に失われる影響があることが明らかになっている。

【0050】

このことから、カソード側のガス拡散層の空気入口側におけるフッ素樹脂含有量は10～90wt%の範囲が望ましいと考えられる。

〔実施の形態2〕

図5は、本実施形態にかかるセルユニットを、空気入口側の範囲において、厚み方向で切断した断面を模式的に示す図である。

【0051】

本実施形態のセルユニット110は、セル120におけるカソード側ガス拡散層124の構成が上記実施形態1のカソード側ガス拡散層24と異なっている以外は、実施の形態1の図1に示すセルユニット10と同様の構成である。

本実施形態のカソード側ガス拡散層 1 2 4 においては、カーボンペーパーをはじめとする導電性多孔質材料に、ガスの拡散性を確保するため撥水性材料が添加されたものを用いている点は上記ガス拡散層 2 4 と同様であるが、カソード触媒層 2 2 と対向する側には、カーボン粒子に撥水性材料が混合添加された混合物が塗布されることによって、保水性調整層 1 2 5 が形成されている。

#### 【 0 0 5 2 】

この保水性調整層 1 2 5 は、カーボン粒子が混合されているため保水性に優れている。そして、ガス拡散層のカソード触媒層と接する側に、このような保水性を有する保水性調整層 1 2 5 を形成することによって、固体高分子膜は安定して湿潤状態に保たれることになる。

本実施形態では、空気入口側の領域 2 0 A において、この保水性調整層 1 2 5 における保水性を調整している。即ち、空気入口側の領域 2 0 A において、酸化剤チャンネル 6 5 と対向する部分（チャンネル対向部 1 2 5 A）では、リブ 6 6 と対向する部分（リブ対向部 1 2 5 B）と比べて保水性が高くなるように調整している。

#### 【 0 0 5 3 】

このような保水性調整層 1 2 5 における保水性の調整は、具体的には、チャンネル対向部 1 2 5 A には比表面積が大きいカーボン粒子を用い、リブ対向部 1 2 5 B には比表面積が小さいカーボン粒子を用いることによってなされている。

一般的に、比表面積が大きいカーボン粒子ほどその保水性（一定重量のカーボン粉末に含ませることができる水の量）が高いので、上記のように保水性調整層 1 2 5 に用いるカーボン材料の比表面積を規定することによって、チャンネル対向部 1 2 5 A ではリブ対向部 1 2 5 B と比べてより保水性を高くすることができる。

#### 【 0 0 5 4 】

このように保水性が調整された保水性調整層 1 2 5 をカソード側ガス拡散層 1 2 4 が備えることによって、上記実施の形態 1 で説明したのと同様の効果を奏する。即ち、酸化剤チャンネル 6 5 に対向する部分とリブ 6 6 に対向する部分とで、固体高分子膜及び触媒層の湿潤を均一化することができる。

なお、保水性調整層 1 2 5 におけるカーボン材料の比表面積を変えても、ガス透過性はあまり影響されないので、保水性調整層 1 2 5 における反応領域全体でガス透過性の均一性を保つことは可能である。

【 0 0 5 5 】

〔実施例 2〕

上記実施の形態 2 に基づき、カソード側ガス拡散層以外は上記実施例 1 と同様の仕様で、実施例のセル 8 ～ 1 0 を作製すると共に、比較例としてセル 1 1, 1 2 を作製し、セル電圧測定試験を行った。

【 0 0 5 6 】

【表 2】

	カーボンの比表面積(m <sup>2</sup> /g)		カーボン比表面積の比率 Ya/Yb
	チャンネル 対向部Ya	リブ対向部 Yb	
セル8	1270	254	5.00
セル9	800	254	3.15
セル10	343	254	1.35
セル11	254	254	1.00
セル12	56	254	0.22

セル 8 ～ 1 0 のカソード側ガス拡散層は、カーボンペーパーに、撥水性材料として P T F E を含浸させて形成し（P T F E 含有量は一律的に 3 0 wt %）、1 0 c m × 1 0 c m、厚さ 2 0 0 μ m としたものの表面に、カーボン粉末と P T F E からなる混合物が塗布されて保水性調整層が形成された構成であるが、当該保水性調整層の空気入口側領域（全体面積に対して 5 0 %）において、表 2 に示す通り、チャンネル対向部 1 2 5 A には、リブ対向部 1 2 5 B と比べて、比表面積の大きいカーボン粉末を用いて保水性を高くした。

【 0 0 5 7 】

なお、保水性調整層を形成する混合物中の P T F E 含有量は 3 0 wt% で共通に設定した。

また、表 2 に示すように、比較例のセル 1 1 では、保水性調整層において、チャンネル対向部 1 2 5 A とリブ対向部 1 2 5 B とに用いるカーボン粉末の比表面積を同等に設定し、比較例のセル 1 2 では、保水性調整層 1 2 5 において、チャンネル対向部 1 2 5 A では、リブ対向部 1 2 5 B と比べて用いるカーボン粉末の比表面積を小さく設定することによって保水性を低くした。そして、それ以外は、上記セル 8 ～ 1 0 と同様に作製した。

#### 【 0 0 5 8 】

以下に各セルの具体的な作製方法を示す。

カソード側ガス拡散層：カーボンペーパー（厚み  $200\ \mu\text{m}$ ）を用意し、このカーボンペーパーを P T F E 分散溶液に浸漬して、 $380^\circ\text{C}$  で 1 時間焼成した。この時点での P T F E 含有量は全体領域で一律に 3 0 wt% となるよう調整した。

比表面積  $254\ \text{m}^2/\text{g}$  のカーボン粉末と P T F E 分散溶液とを混合して混合物スラリー（固形分中の P T F E 含有量は 3 0 wt%）を作製した。そして、空気入口側領域におけるチャンネル対向部 1 2 4 A に相当する領域にだけマスキングシートを置いて、その上から、この混合分散液を塗布した。

#### 【 0 0 5 9 】

次に、比表面積が 1 2 7 0、8 0 0、3 4 3、2 5 4、 $56\ \text{m}^2/\text{g}$  の各値を有するカーボン粉末と P T F E 分散溶液とを混合した混合物スラリー（固形分中の P T F E 含有量は 3 0 wt%）を作製した。そして、空気入口側領域におけるチャンネル対向部 1 2 5 A に相当する領域だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、この各混合物スラリーを塗布した後、 $380^\circ\text{C}$  で 1 時間焼成した。

#### 【 0 0 6 0 】

このようにして、セル 8 ～ 1 2 用のカソード側ガス拡散層を作製した。そして、作製したカソード側ガス拡散層を用いて、上記実施例 1 と同様にセル 8 ～ 1 2 を作製した。

（セル電圧測定試験）

このように作製した実施例及び比較例の各セルについて、上記実施例 1 におけ

るセル電圧測定試験と同じ条件でセル電圧を測定した。

#### 【0061】

図6は、各セルのセル電圧測定値を示すものであって、空気入口側領域において、リブ対向部125Aに用いたカーボン粉末の比表面積 $Y_b$ に対するチャンネル対向部125Bに用いたカーボン粉末の比表面積 $Y_a$ の比率( $Y_a/Y_b$ )と、セル電圧(mV)との関係を示す特性図である。

考察：

図6から、セル8～10は、セル11、12と比べて、高いセル電圧が得られていることがわかる。

#### 【0062】

これは、セル8～10では、保水性調整層125の空気入口側領域において、上記比表面積の比率 $Y_a/Y_b$ を1.35～5の範囲に設定することによって、チャンネル対向部125Aの保水性がリブ対向部125Bの保水性に対して適度に大きくなっており、それによって、セル8～10においては、チャンネル対向部125Aとリブ対向部125Bとで固体高分子膜及び電極層の湿潤が均一化されているのに対して、セル11、12においては、このような湿潤性均一化の作用がないためと考えられる。

#### 【0063】

##### 〔実施の形態3〕

本実施形態のセルユニットは、実施の形態2のセルユニット110と同様の構成であるが、保水性調整層125における保水性の調整方法が異なっている。

即ち、上記実施の形態2では、保水性調整層125におけるチャンネル対向部124Aとリブ対向部125Bとの保水性を調整するのに、チャンネル対向部125Aとリブ対向部125Bとで用いるカーボン粉末の比表面積を調整することによって行ったが、本実施形態では、カーボン粉末に対する撥水性材料の添加量を、チャンネル対向部125Aではリブ対向部125Bよりも少なく設定することによって行う。

#### 【0064】

これによっても、上記実施の形態1で説明したのと同様、酸化剤チャンネル65

と対向する部分で固体高分子膜やカソード触媒層が乾燥しやすいという傾向が抑えられ、セル 1 2 0 における酸化剤チャンネル 6 5 に対向する部分とリブ 6 6 と対向する部分との間で湿潤性が均一化されることになる。

【実施例 3】

上記実施の形態 3 に基づき、カソード側ガス拡散層 1 2 4 以外は上記実施例 1 と同様の仕様で、実施例のセル 1 3 ～ 1 7 を作製すると共に、比較例としてセル 1 8, 1 9 を作製し、セル電圧測定試験を行った。

【0 0 6 5】

【表 3】

	保水性調整層中の PTFE 含有量		PTFE 含有量の 比率 Za/Zb
	チャンネル 対向部 Za	リブ対向部 Zb	
セル 13	4	30	0.13
セル 14	6	30	0.20
セル 15	10	30	0.33
セル 16	17	30	0.57
セル 17	25	30	0.83
セル 18	30	30	1.00
セル 19	40	30	1.33

セル 1 3 ～ 1 7 のカソード側ガス拡散層は、カーボンペーパーに、撥水性材料としての P T F E を含浸させて形成し（P T F E 含有量は一律的に 3 0 wt %）、1 0 c m × 1 0 c m、厚さ 2 0 0 μ m としたものの表面に、カーボン粉末と P T F E 樹脂からなる混合物が塗布されて保水性調整層が形成された構成であるが、当該保水性調整層の空気入口側領域（全体面積に対して 5 0 %）において、表 3 に示すように、チャンネル対向部 1 2 5 A ではリブ対向部 1 2 5 B と比べて P T F E 樹脂の含有量を小さく設定して保水性を高くした。



## 【 0 0 6 6 】

また、表 3 に示すように、比較例のセル 1 8 では、保水性調整層 1 2 5 において、チャンネル対向部 1 2 5 A とリブ対向部 1 2 5 B とで P T F E 含有量を同等に設定し、比較例のセル 1 9 では、保水性調整層 1 2 5 において、チャンネル対向部 1 2 5 A では、リブ対向部 1 2 5 B と比べて P T F E 含有量を大きく設定することによって、保水性を低く設定した。そして、それ以外は、上記セル 1 3 ~ 1 7 と同様に作製した。

## 【 0 0 6 7 】

以下に各セルの具体的な作製方法を示す。

カソード側ガス拡散層：カーボンペーパー（厚み  $200\mu\text{m}$ ）を用意し、このカーボンペーパーを P T F E 分散溶液に浸漬して、 $380^{\circ}\text{C}$  で 1 時間焼成した。この時点での P T F E 含有量は全体領域で一律的に 3 0 wt% となるよう調整した。

比表面積  $254\text{m}^2/\text{g}$  のカーボン粉末と P T F E 分散溶液とを混合して混合物スラリー（固形分中の P T F E 含有量は 3 0 wt%）を作製した。そして、空気入口側領域におけるチャンネル対向部 1 2 5 A に相当する領域にだけマスキングシートを置いて、その上から、この混合分散液を塗布した。

## 【 0 0 6 8 】

次に、比表面積  $254\text{m}^2/\text{g}$  のカーボン粉末と P T F E 分散溶液とを混合し、固形分中の P T F E 含有量を 4、6、1 0、1 7、2 5、3 0、4 0 wt% の各値に設定した混合物スラリーを作製した。そして、空気入口側領域におけるチャンネル対向部 1 2 5 A に相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、上記各混合物スラリーをそれぞれ塗布した後、 $380^{\circ}\text{C}$  で 1 時間焼成した。

## 【 0 0 6 9 】

このようにして、セル 1 3 ~ 1 9 用のカソード側ガス拡散層を作製した。そして、作製したカソード側ガス拡散層を用いて、上記実施例 1 と同様にしてセル 1 3 ~ 1 9 を作製した。

（セル電圧測定試験）

このように作製した実施例及び比較例の各セルについて、上記実施例 1 におけ

るセル電圧測定試験と同じ条件でセル電圧を測定した。

#### 【0070】

図7は、各セルのセル電圧測定値を示すものであって、保水性調整層125の空気入口側領域において、リブ対向部125に含まれるPTFE含有率 $Z_b$ に対するチャンネル対向部125Bに含まれるPTFE含有率 $Z_a$ の比率( $Z_a/Z_b$ )と、セル電圧(mV)との関係を示す特性図である。

考察：

図7から、セル14～17は、セル18、19と比べて、高いセル電圧が得られており、保水性調整層125において、チャンネル対向部125Aにおけるフッ素樹脂含有量をリブ対向部125Bにおけるフッ素樹脂含有量に対して0.2～0.8の範囲内に設定することが好ましいことがわかる。

#### 【0071】

これは、セル14～17では、保水性調整層125の空気入口側領域において、チャンネル対向部125AにおけるPTFE含有量をリブ対向部125BにおけるPTFE含有量に対して0.2～0.8の範囲内に設定することによって、チャンネル対向部125Aの保水性がリブ対向部125Bの保水性に対して適度に大きくなっており、それによって、チャンネル対向部125Aとリブ対向部125Bとで固体高分子膜及び電極層の湿潤が均一化されているのに対して、セル18、19においては、このような湿潤性均一化の作用がないためと考えられる。

#### 【0072】

なお、セル14～17と比べてセル13では、セル電圧がかなり低い。これは、セル13では、空気入口側領域におけるチャンネル対向部125Aで保水性調整層中のPTFE樹脂含有量がかなり少ないので、この部分に水が滞留してガス拡散性が極端に損なわれたためと考えられる。

#### 〔実施の形態4〕

図8は、本実施形態にかかるセルユニットを、空気入口側の範囲において、厚み方向で切断した断面を模式的に示す図である。

#### 【0073】

本実施形態のセルユニット210では、セル220におけるカソード側ガス拡

散層 2 2 4 には保水性の調整を施さず、カソード触媒層 2 2 2 に保水性の調整を施している以外は、実施の形態 1 の図 1 に示すセルユニット 1 0 と同様の構成である。

本実施形態のカソード触媒層 2 2 2 は、上記カソード触媒層 2 2 と同様に白金系触媒担持カーボンによって形成されているが、酸化剤チャンネル 6 5 と対向するチャンネル対向部 2 2 2 A では、リブ 6 6 と対向するリブ対向部 2 2 2 B と比べて保水性を高く設定している。

#### 【 0 0 7 4 】

このカソード触媒層 2 2 2 における保水性の調整は、具体的には、チャンネル対向部 2 2 2 A には触媒担持体として比表面積が大きいカーボン粒子（保水性の大きいカーボン粒子）を用い、リブ対向部 2 2 2 B には比表面積が小さいカーボン粒子（保水性の小さいカーボン粒子）を用いることによってなされている。

そして、このように保水性が調整されたカソード触媒層 2 2 2 を備えることによって、上記実施の形態 1 で説明したのと同様の効果を奏する。

#### 【 0 0 7 5 】

即ち、酸化剤チャンネル 6 5 に対向する部分とリブ 6 6 に対向する部分とで、固体高分子膜及び触媒層の湿潤を均一化することができる。

#### 〔実施例 4〕

上記実施の形態 4 に基づき、カソード触媒層 2 2 2 及びカソード側ガス拡散層 2 2 4 以外は上記実施例 1 と同様の仕様で、実施例 4 のセルを作製した。

#### 【 0 0 7 6 】

本実施例のカソード側ガス拡散層 2 2 4 は、カーボンペーパーに、撥水性材料としての P T F E を含浸させて形成し（P T F E 含有量は均一的に 3 0 wt %）、 $10\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ 、厚さ  $200\text{ }\mu\text{m}$  としたものを用了。

またカソード触媒層 2 2 2 は、何れの領域でも、P t 担持カーボン粉末と N a f i o n と P T F E の重量比は 1 0 0 : 2 0 : 1 0 で共通であるが、チャンネル対向部 2 2 2 A に担持体として用いられているカーボン粉末は比表面積が  $800\text{ m}^2/\text{g}$  であるのに対して、リブ対向部 2 2 2 B に担持体として用いられているカーボン粉末は比表面積が  $254\text{ m}^2/\text{g}$  である。

## 【 0 0 7 7 】

以下にセルの具体的な作製方法を示す。

比表面積  $254 \text{ m}^2/\text{g}$  のカーボン粉末に白金担持させて Pt 担持カーボン粉末を作製し、この Pt 担持カーボン粉末と Nafion 溶液と PTFE とを、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 20 : 10 となるように混合し、混合スラリー A を作製した。

## 【 0 0 7 8 】

また、比表面積  $800 \text{ m}^2/\text{g}$  のカーボン粉末に白金担持させて Pt 担持カーボン粉末を作製し、この Pt 担持カーボン粉末と Nafion 溶液と PTFE とを、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 20 : 10 となるように混合し、混合スラリー B を作製した。

そして、撥水性材料を含浸させたカーボンペーパー（カソード側ガス拡散層）に対して、空気入口側領域におけるチャンネル対向部 222A に相当する領域だけ開口したマスキングシートを置いて、その上から、混合スラリー B を塗布した。

## 【 0 0 7 9 】

次に、空気入口側領域におけるリブ対向部 222B に相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、混合物スラリー A を塗布することによって、カソード触媒層 222 を形成した。

そして、このように作製したカソード側ガス拡散層にカソード触媒層を形成したものをを用いて、上記実施例 1 と同様にしてセルを作製した。

## 【 0 0 8 0 】

このように作製した実施例セルと、カソード触媒層のチャンネル対向部 222A とリブ対向部 222B とで用いるカーボン比表面積の調整を施していない比較例セルとを、上記実施例 1 と同様にしてセル電圧測定試験を行ったところ、実施例セルの方が高いセル電圧が得られた。

## 〔実施の形態 5〕

本実施形態のセルユニットは、実施の形態 4 のセルユニット 210 と同様の構成であるが、カソード触媒層 222 における保水性の調整方法が異なっている。

## 【 0 0 8 1 】

即ち、上記実施の形態 4 では、カソード触媒層 2 2 2 におけるチャンネル対向部 2 2 2 A とリブ対向部 2 2 2 B との保水性を調整をするのに、チャンネル対向部 2 2 2 A とリブ対向部 2 2 2 B とで担持体として用いるカーボン材料の比表面積を調整することによって行ったが、本実施形態では、カーボン触媒層 2 2 2 に添加するイオン交換体の添加量を、チャンネル対向部 1 2 5 A ではリブ対向部 1 2 5 B よりも大きくすることによって行う。

【 0 0 8 2 】

これによっても、酸化剤チャンネル 6 5 が対向する部分で固体高分子膜やカソード触媒層が乾燥しやすいという傾向が抑えられ、セル 2 2 0 における酸化剤チャンネル 6 5 に対向する部分とリブ 6 6 と対向する部分との間で湿潤性が均一化されることになる。

【実施例 5】

上記実施の形態 5 に基づき、カソード触媒層 2 2 2 以外は上記実施例 5 と同様の仕様でセルを作製した。

【 0 0 8 3 】

本実施例のカソード触媒層 2 2 2 は、何れの領域でも、担持体として用いられているカーボン粉末の比表面積は  $254 \text{ m}^2/\text{g}$  と共通であるが、チャンネル対向部 2 2 2 A においては、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 40 : 10 であるのに対して、リブ対向部 2 2 2 B では、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 20 : 10 である。

【 0 0 8 4 】

以下にセルの具体的な作製方法を示す。

上記実施例 4 で説明したのと同様の混合スラリー A を作製した。

また、比表面積  $254 \text{ m}^2/\text{g}$  のカーボン粉末に白金担持させて Pt 担持カーボン粉末を作製し、この Pt 担持カーボン粉末と Nafion 溶液と PTFE とを、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 40 : 10 となるように混合し、混合スラリー C を作製した。

【 0 0 8 5 】

そして、撥水性材料を含浸させたカーボンペーパー（カソード側ガス拡散層）

に対して、空気入口側領域におけるチャンネル対向部 2 2 2 A に相当する領域だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、混合スラリー C を塗布した。

次に、空気入口側領域におけるリブ対向部 2 2 2 B に相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、混合物スラリー A を塗布することによって、カソード触媒層 2 2 2 を形成した。

#### 【 0 0 8 6 】

そして、このように作製したカソード側ガス拡散層にカソード触媒層を形成したものをを用いて、上記実施例 1 と同様にしてセルを作製した。

このように作製した実施例セルと、カソード触媒層のチャンネル対向部 2 2 2 A とリブ対向部 2 2 2 B とで Nafion 量の調整を施していない比較例セルとを、上記実施例 1 と同様にしてセル電圧測定試験を行ったところ、実施例セルの方が高いセル電圧が得られた。

#### 【 0 0 8 7 】

##### 〔変形例など〕

\* 上記実施の形態 2 には、保水調整層 1 2 5 を、カソード側ガス拡散層 1 2 4 のカソード触媒層 2 2 と対向する側にのみ設けた例を示したが、保水調整層 1 2 5 を設ける位置はこれに限らず、ガス流路側に設けても、或いはガス拡散層の厚み方向全域に設けてもよい。

\* 実施の形態 1 と同様、実施の形態 2 ～ 5 においても、湿潤性を均一化する効果を得るためには、カソード側ガス拡散層或はカソード触媒層において、酸化剤の入口側端部から出口側に向かう一定割合（好ましくはカソード側ガス拡散層或はカソード触媒層における酸化剤の入口側端部から出口側端部までの全領域の面積に対して 1 0 % ～ 9 0 % の領域に対して、チャンネル対向部とリブ対向部との間で上記のように保水性調整を行うことが好ましい。

\* 上記各実施の形態においては、カソード側ガス拡散層やカソード触媒層において、酸化剤ガス入口側の端部から一定範囲の領域において保水性の調整を施す例を示したが、このように保水性の調整を施す範囲は、酸化剤ガス入口側に寄っていれば、酸化剤ガス入口側端部から少し離れたところに施しても、同様の効果を奏する。

\* 上記実施の形態 1 ～ 5 示したカソード側ガス拡散層或はカソード触媒層に対する保水性調整方法は、その 2 つ以上を組み合わせて用いることも可能である。

\* 実施の形態 2 においては、カソード側ガス拡散層だけに、カーボン粉末と撥水性材料を混合した混合物からなる保水性調整層を形成する例を示したが、アノード側ガス拡散層にもカーボン粉末と撥水性材料を混合した混合物からなる保水性調整層を形成してもよく、固体高分子膜に対するより高い保湿効果が期待できる。

\* 上記各実施の形態では、酸化剤ガスと燃料ガスの流れが平行なセルユニットに基づいて説明したが、セルユニットの構成はこれに限定されず、例えばカソード側とアノード側の各セパレータ板のチャンネルが直交する構成のセルユニットであってもよい。

\* 上記実施の形態で説明したチャンネル対向部とリブ対向部との間における保水性の調整に加えて更に、空気入口側領域 2 0 A おいて、空気出口側領域 2 0 B と比べてガス拡散層の撥水性が高くなるよう、撥水性材料の含有量を調整することも可能である。

#### 【 0 0 8 8 】

このような空気入口側領域及び出口側領域の調整を組み合わせれば、空気入口側領域 2 0 A で、空気出口側領域 2 0 B と比べて水分蒸発が抑制されるので、空気入口側と出口側との間における固体高分子膜及び触媒層の湿潤性も均一化できる。

\* 上記実施の形態においては、燃料ガスを用いて発電する一般的な固体高分子型燃料電池を例にとって説明したが、本発明は、燃料ガスの代りにメタノールをアノード側に直接供給しながら発電する DMFC に適用することも可能である。

#### 【 0 0 8 9 】

##### 【発明の効果】

以上説明したように、本発明は、固体高分子膜にアノード及びカソードを配してなるセルを備えた燃料電池において、カソード触媒層とカソード側プレートとの間に介挿されるガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方を、酸化剤流路と対向する領域で、リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるように構成

することによって、固体高分子膜及び電極触媒層を、酸化剤ガス流路に対向する領域とリブに対向する領域とで均一的に保湿することを可能とした。

【 0 0 9 0 】

このような発明によれば、固体高分子膜及び電極触媒層の全体領域にわたって湿潤性とガス拡散性を確保することができるので、高性能で燃料電池を発電することができる。

特に無加湿の空気をカソードに供給して発電する燃料電池の場合には、本発明を適用することによって得られる効果も大きい。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

実施の形態 1 にかかる固体高分子型燃料電池を構成するセルユニットの組立図である。

【図 2】

実施の形態 1 にかかる燃料電池スタックの構成を示す図である。

【図 3】

実施の形態 1 にかかるセルユニットの構成を示す断面模式図である。

【図 4】

実施例 1 にかかる各セルのセル電圧測定値を示す特性図である。

【図 5】

実施の形態 2 にかかるセルユニットの構成を示す断面模式図である。

【図 6】

実施例 2 にかかる各セルのセル電圧測定値を示す特性図である。

【図 7】

実施例 3 にかかる各セルのセル電圧測定値を示す特性図である。

【図 8】

実施の形態 4 にかかる燃料電池のセルユニット構成を示す断面模式図である。

【図 9】

従来技術にかかる燃料電池の一例を示す図である。

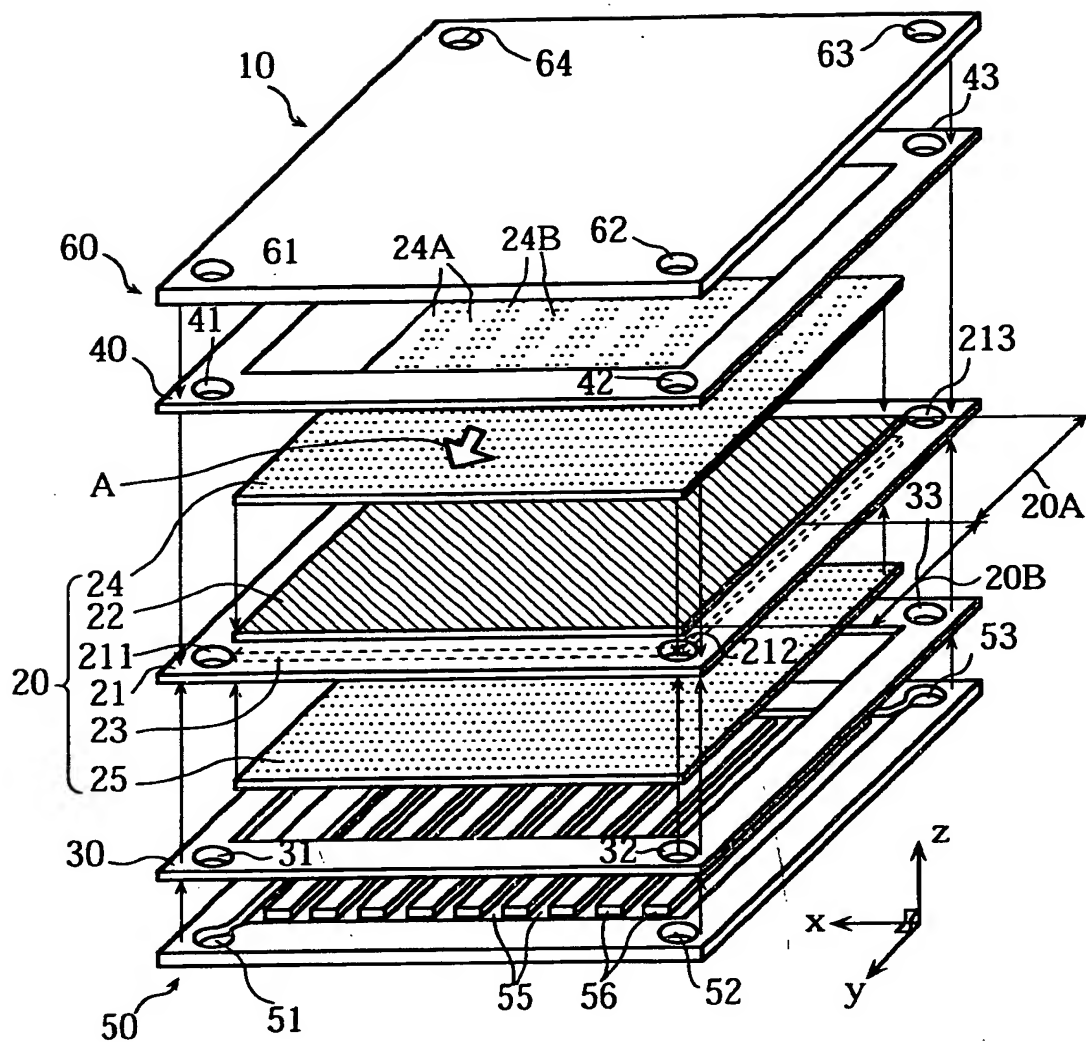
【符号の説明】



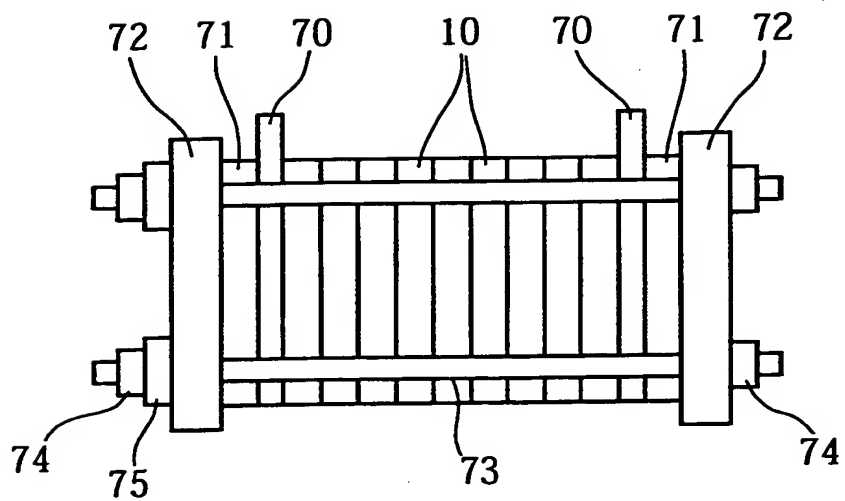
- 2 0     セル
- 2 1     固体高分子膜
- 2 2     カソード触媒層
- 2 3     アノード触媒層
- 2 4     カソード側ガス拡散層
- 2 4 A    チャンネル対向部
- 2 4 B    リブ対向部
- 2 5     アノード側ガス拡散層
- 3 0     ガスケット
- 5 0     アノード側セパレータ板
- 5 5     燃料ガスチャンネル
- 5 6     リブ
- 6 0     カソード側セパレータ板
- 6 5     酸化剤チャンネル
- 6 6     リブ
- 1 2 5    保水性調整層
- 1 2 5 A   チャンネル対向部
- 1 2 5 B   リブ対向部
- 2 2 2    カソード触媒層
- 2 2 2 A   チャンネル対向部
- 2 2 2 B   リブ対向部
- 2 2 4    カソード側ガス拡散層

【書類名】 図面

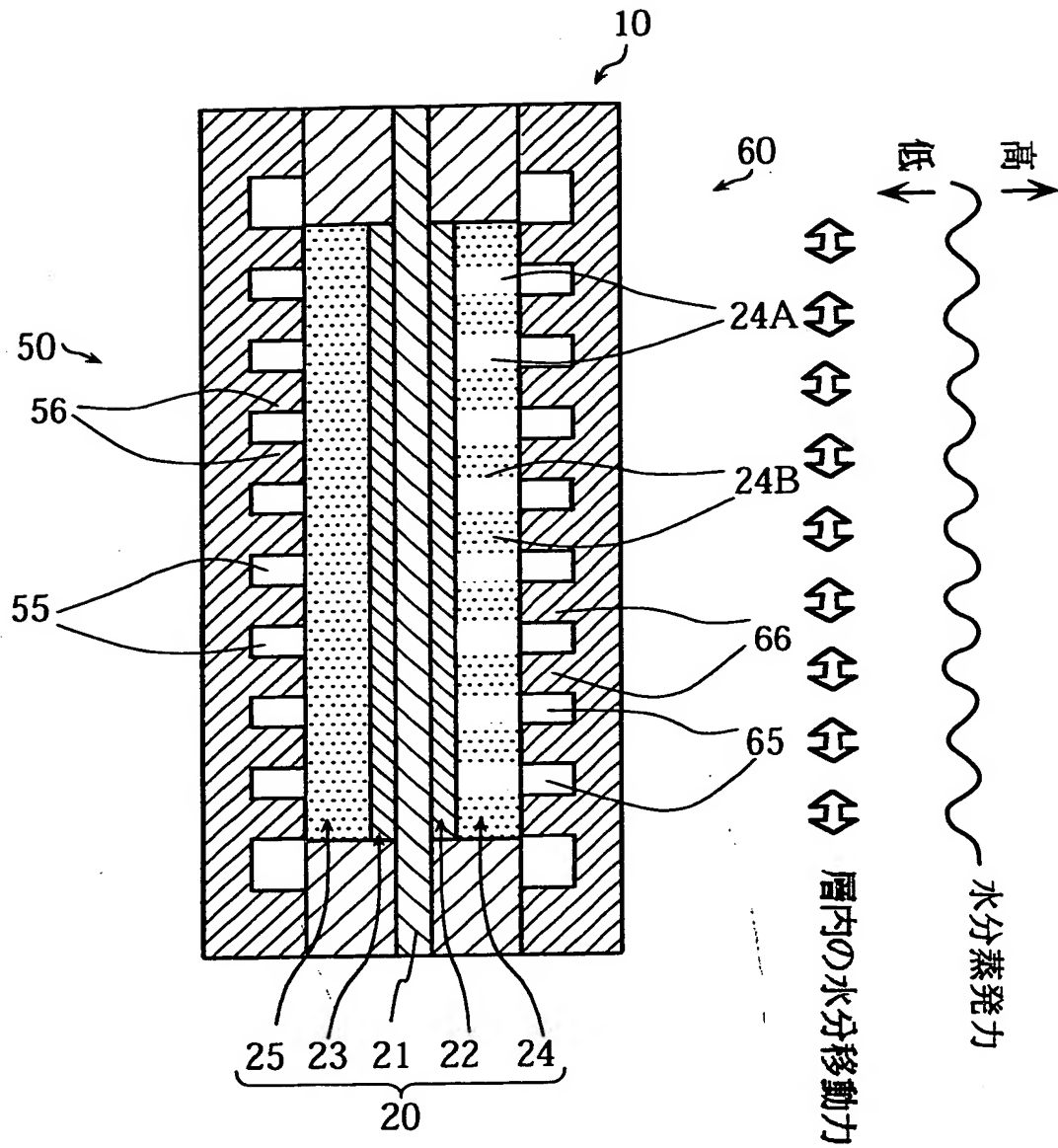
【図 1】



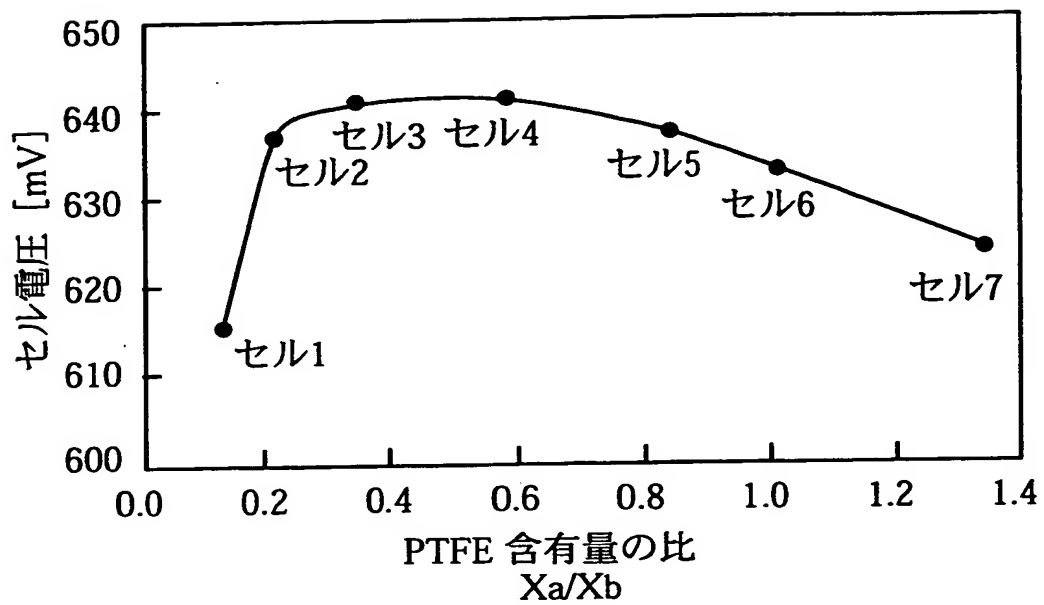
【図 2】



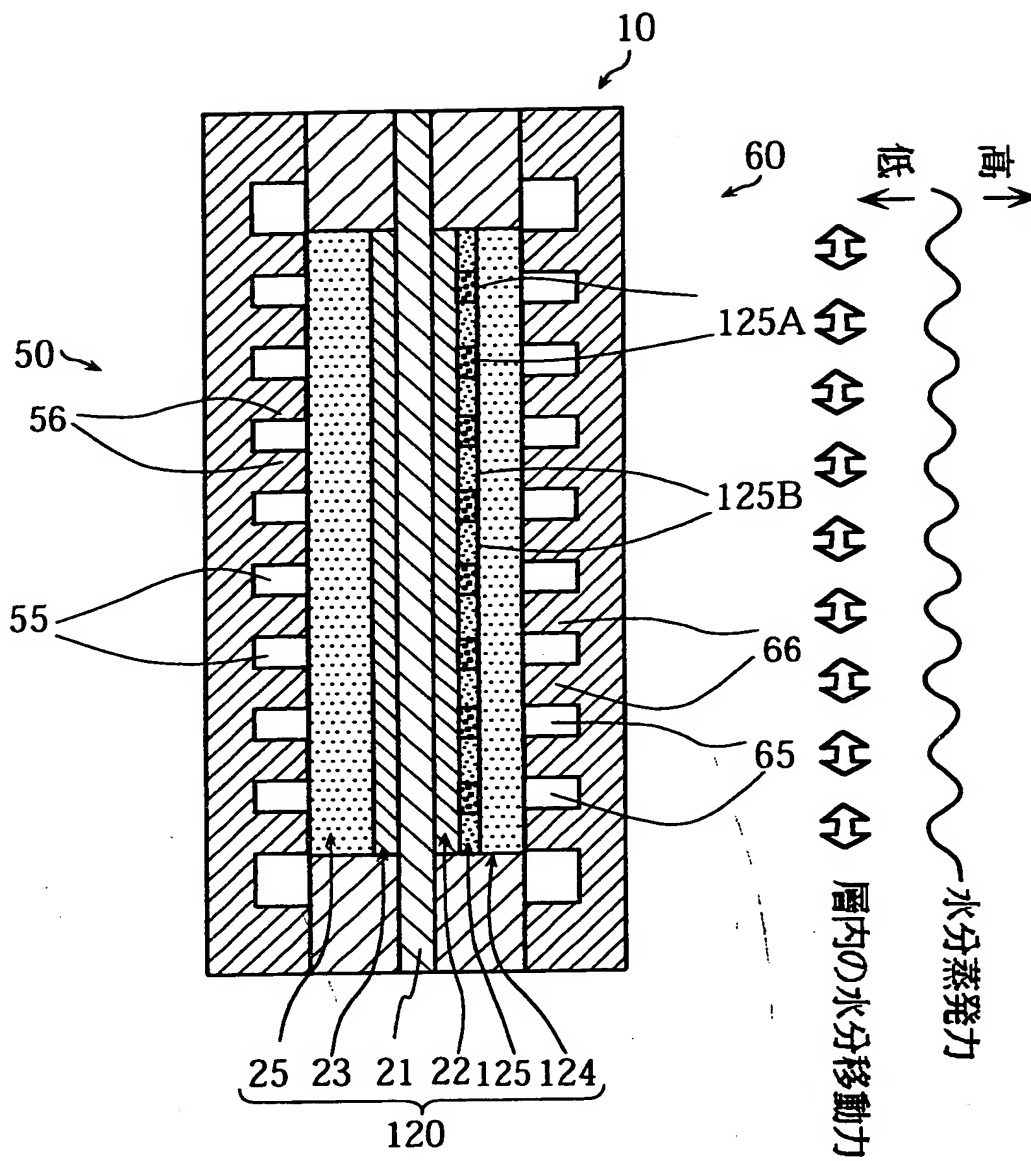
【図3】



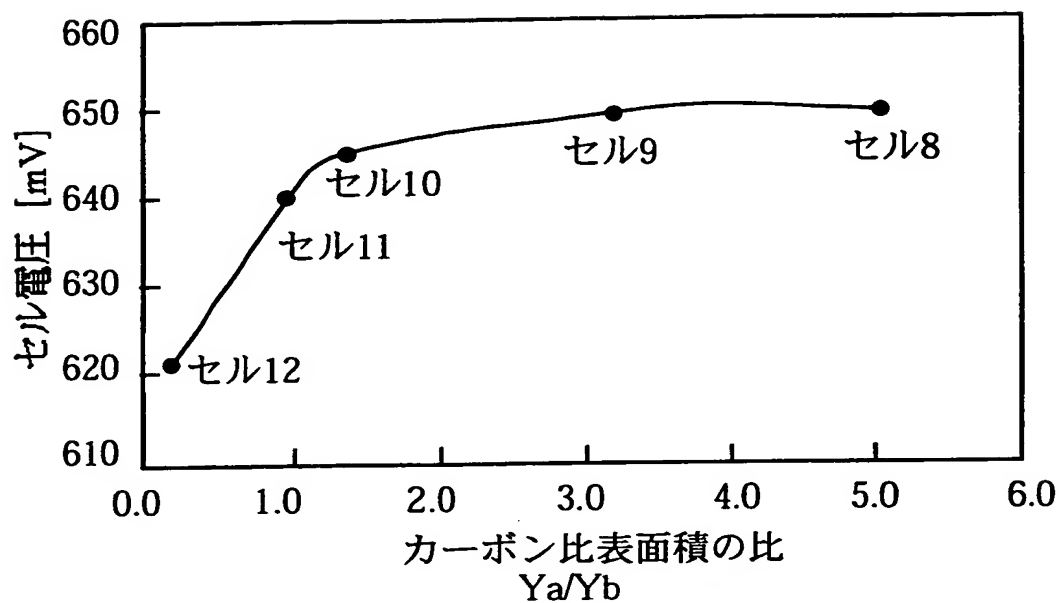
【図 4】



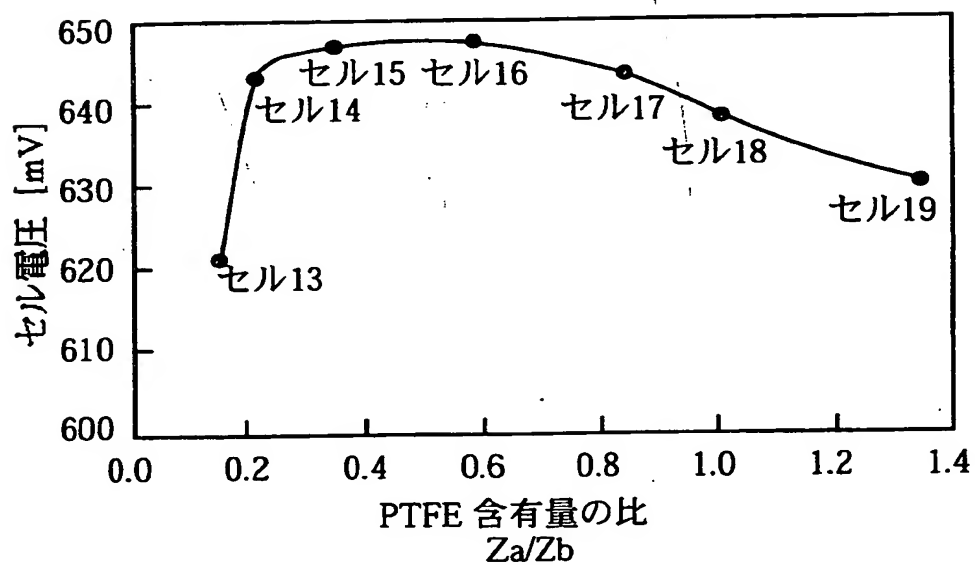
【図 5】



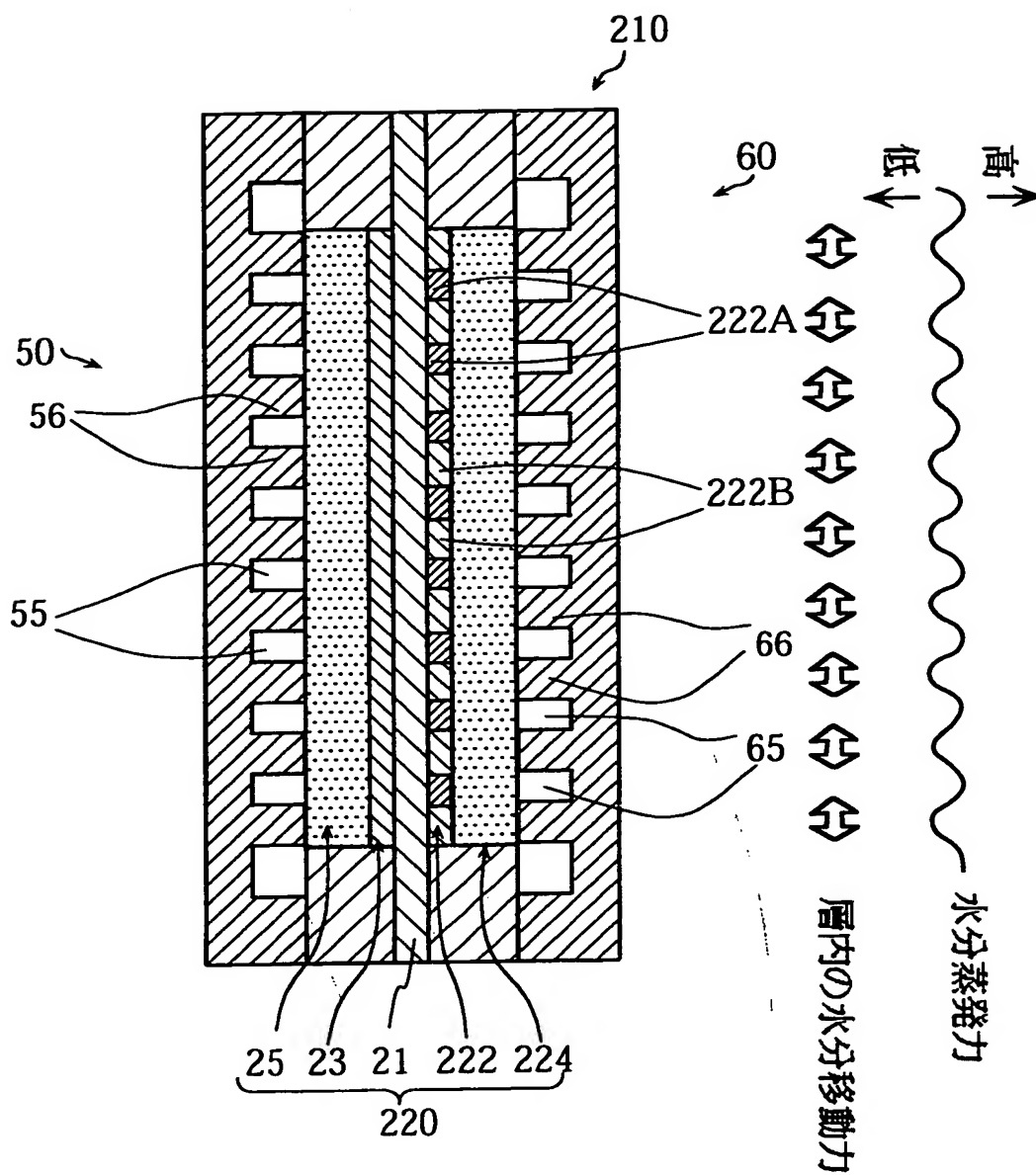
【図 6】



【図 7】

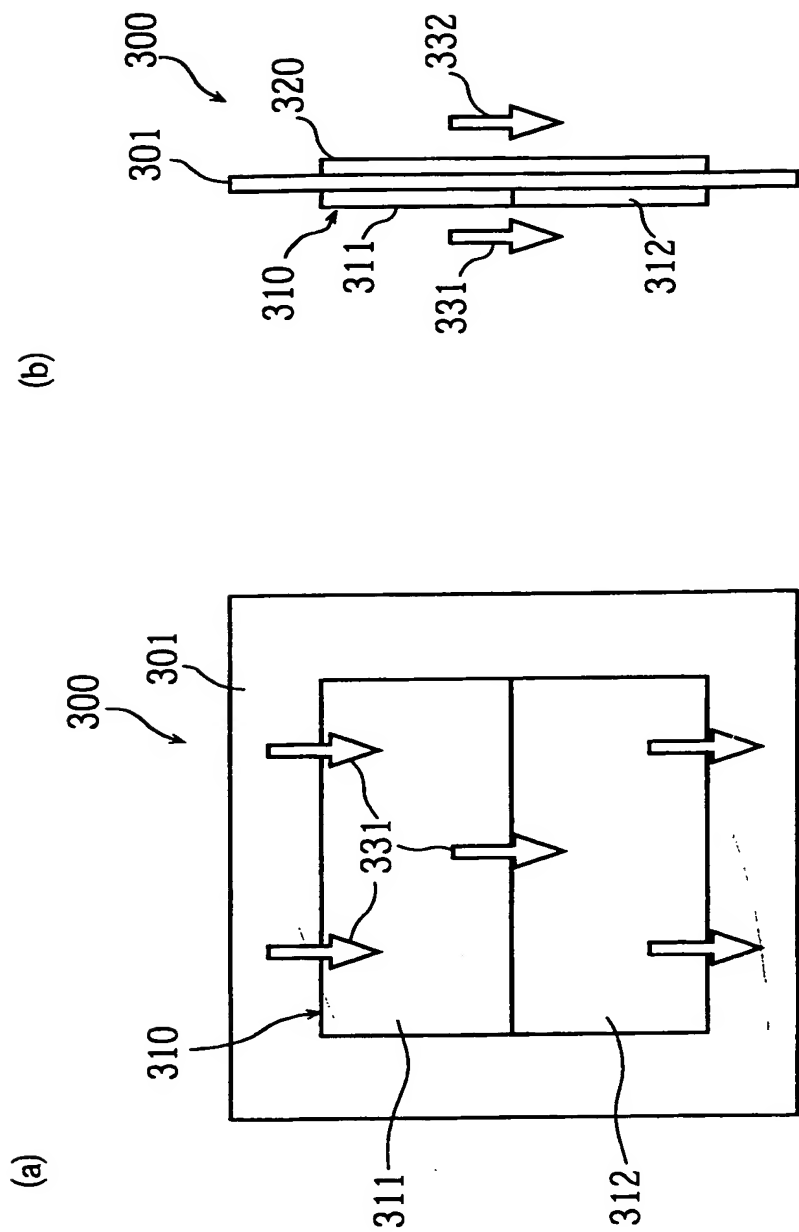


【図 8】





【図 9】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 固体高分子膜にアノード及びカソードを配してなるセルを備えた燃料電池において、固体高分子膜及び電極触媒層の湿潤性を均一化することによって、安定して優れた特性で発電できるものを提供する。

【解決手段】 カソード触媒層 2 2 とカソード側セパレータ板 6 0 とに挟まれたガス拡散層 2 4 において、酸化剤ガス（空気）の入口側から一定の範囲では、酸化剤チャネル 6 5 と対向する領域 2 4 A では、リブ 6 6 と対向する領域 2 4 B と比べて保水性が高くなるように調整されている。

このガス拡散層 2 4 における保水性の調整は、チャネル対向部 2 4 A における単位面積当たりの撥水性材料の含有量を、リブ対向部 2 4 B における単位面積当たりの撥水性材料の含有量より小さく設定することによって行う。

【選択図】 図 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000001889]

1. 変更年月日	1993年10月20日
[変更理由]	住所変更
住 所	大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号
氏 名	三洋電機株式会社